

(12) NACH DEM VERTRETERN ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
1. April 2004 (01.04.2004)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2004/026812 A3

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: C07C 253/30, 255/53 (74) Anwälte: WEICKMANN & WEICKMANN usw.; Postfach 860 820, 81635 München (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2003/009818

(81) Bestimmungsstaaten (national): JP, US.

(22) Internationales Anmeldedatum:

4. September 2003 (04.09.2003)

(84) Bestimmungsstaaten (regional): europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).

(25) Einreichungssprache: Deutsch

Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

Deutsch

Erklärung gemäß Regel 4.17:

— Erfindererklärung (Regel 4.17 Ziffer iv) nur für US

(30) Angaben zur Priorität:

102 42 080.7 11. September 2002 (11.09.2002) DE

Veröffentlicht:

— mit internationalem Recherchenbericht
— vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eintreffen

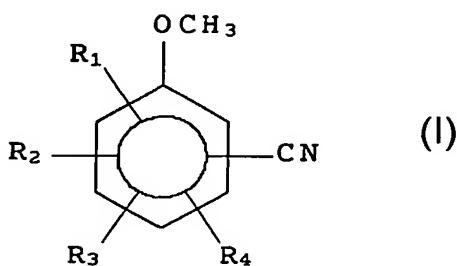
(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): DEGUSSA AG [DE/DE]; Dr.-Albert-Frank-Strasse 32, 83308 Trostberg (DE).

(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen Recherchenberichts: 13. Mai 2004

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: METHOD FOR CATALYST-FREE PRODUCTION OF CYANOPHENOLS FROM METHOXYBENZONITRILES

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR KATALYSATOR-FREIEN HERSTELLUNG VON CYANOPHENOLEN AUS METHOXYBENZONITRILEN



(57) Abstract: According to the inventive method for catalyst-free production of cyanophenols from methoxybenzonitriles, substituted methoxybenzonitriles of general formula (I) are reacted with an alkali alcoholate at temperatures of 80 - 230 °C. The inventive method is based on simple, low-cost and easily accessible raw materials and can be carried out in technically simple conditions, enabling cyanophenols to be produced with high and partially quantitative yields with guaranteed low waste levels. Sodium methanolate is used as a preferred alkali alcoholate at preferred temperatures of 140 - 180 °C. The methoxybenzonitrile component can optionally be produced by ammonoxidation of a methoxytoluol of ammonia and (air-)oxygen and be directly further reacted.

(57) Zusammenfassung: Beim vorgeschlagenen Verfahren zur Katalysator-freien Herstellung von Cyanophenolen aus Methoxybenzonitriilen werden substituierte Methoxybenzonitrile der allgemeinen Formel (I) mit einem Alkalialkoholat bei Temperaturen zwischen 80 und 230 °C umgesetzt. Dieses Verfahren, das von einfachen, kostengünstigen und leicht zugänglichen Rohstoffen ausgeht und unter technisch leicht realisierbaren Bedingungen abläuft, ermöglicht die Herstellung von Cyanophenolen mit hohen und zum Teil sogar quantitativen Ausbeuten und garantiert geringen Abfallmengen. Als bevorzugtes Alkalialkoholat wird insbesondere Natriummethanolat bei bevorzugten Temperaturen zwischen 140 und 180 °C eingesetzt. Die Methoxybenzonitril-Komponente kann ggf. durch Ammonoxidation eines Methoxytoluols in Gegenwart von Ammoniak und (Luft-)Sauerstoff hergestellt und direkt weiter umgesetzt werden.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP 03/09818A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 C07C253/30 C07C255/53

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 7 C07C

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the International search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, CHEM ABS Data, BEILSTEIN Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 3 567 758 A (HEYWOOD BASIL JASON) 2 March 1971 (1971-03-02)	1-9
Y	Spalte 2, Zeile 55 – Spalte 3, Zeile 10; Beispiele; Ansprüche 11-16	1-9
Y	L. TESTAFERRI ET AL: "The reaction of unactivated aryl halides with sodium methoxide in HMPA" TETRAHEDRON, vol. 39, no. 1, 1983, pages 193-197, XP002274200 Seite 193, "Scheme 1"; Seite 195, Absatz 2; --- -/-	1-9

 Further documents are listed in the continuation of box C. Patent family members are listed in annex.

° Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

Date of mailing of the international search report

23 March 2004

06/04/2004

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL – 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Sen, A

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP 03/09818

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	GB 1 065 936 A (RHONE POULENC SA) 19 April 1967 (1967-04-19) page 2, left-hand column, line 9-11; claims 1-4 ---	1-9
A	GB 1 442 250 A (CHINOLEIN GYOGYSZER ES VEGYESZET) 14 July 1976 (1976-07-14) claims 1-8; example 1 -----	1-9

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No
PCT/EP 03/09818

Patent document cited in search report	Publication date		Patent family member(s)	Publication date
US 3567758	A 02-03-1971	AT BE CH DE FR GB NL	282603 B 714666 A 475954 A 1768352 A1 1565812 A 1176239 A 6805991 A ,B	10-07-1970 04-11-1968 31-07-1969 16-03-1972 02-05-1969 01-01-1970 06-11-1968
GB 1065936	A 19-04-1967	FR BE CH	1438447 A 678631 A 442354 A	13-05-1966 29-09-1966 31-08-1967
GB 1442250	A 14-07-1976	HU AT AT CS DD JP JP JP PL SU	167251 B 330159 B 722874 A 175485 B2 116605 A1 1166393 C 50062945 A 57053781 B 96921 B1 555849 A3	27-09-1975 25-06-1976 15-09-1975 31-05-1977 05-12-1975 08-09-1983 29-05-1975 15-11-1982 31-01-1978 25-04-1977

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationaler Aktenzeichen
PCT/EP 03/09818

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 C07C253/30 C07C255/53

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 C07C

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der Internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, CHEM ABS Data, BEILSTEIN Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 3 567 758 A (HEYWOOD BASIL JASON) 2. März 1971 (1971-03-02)	1-9
Y	Spalte 2, Zeile 55 – Spalte 3, Zeile 10; Beispiele; Ansprüche 11-16	1-9
Y	L. TESTAFERRI ET AL: "The reaction of unactivated aryl halides with sodium methoxide in HMPA" TETRAHEDRON, Bd. 39, Nr. 1, 1983, Seiten 193-197, XP002274200 Seite 193, "Scheme 1"; Seite 195, Absatz 2; ---	1-9
	---	-/-

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :	*T* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist	*X* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden
E älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem Internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist	*Y* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
L Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)	*&* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist
O Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht	
P Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist	

Datum des Abschlusses der Internationalen Recherche

23. März 2004

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

06/04/2004

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Sen, A

INTERNATIONALER ~~AKTENZEICHEN~~ SICHERCHENBERICHT

Internationaler Aktenzeichen

P 03/09818

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	GB 1 065 936 A (RHONE POULENC SA) 19. April 1967 (1967-04-19) Seite 2, linke Spalte, Zeile 9-11; Ansprüche 1-4 ---	1-9
A	GB 1 442 250 A (CHINOIN GYOGYSZER ES VEGYESZET) 14. Juli 1976 (1976-07-14) Ansprüche 1-8; Beispiel 1 -----	1-9

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationale Patentzeichen

PCT 03/09818

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung		Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 3567758	A	02-03-1971	AT	282603 B	10-07-1970
			BE	714666 A	04-11-1968
			CH	475954 A	31-07-1969
			DE	1768352 A1	16-03-1972
			FR	1565812 A	02-05-1969
			GB	1176239 A	01-01-1970
			NL	6805991 A ,B	06-11-1968
GB 1065936	A	19-04-1967	FR	1438447 A	13-05-1966
			BE	678631 A	29-09-1966
			CH	442354 A	31-08-1967
GB 1442250	A	14-07-1976	HU	167251 B	27-09-1975
			AT	330159 B	25-06-1976
			AT	722874 A	15-09-1975
			CS	175485 B2	31-05-1977
			DD	116605 A1	05-12-1975
			JP	1166393 C	08-09-1983
			JP	50062945 A	29-05-1975
			JP	57053781 B	15-11-1982
			PL	96921 B1	31-01-1978
			SU	555849 A3	25-04-1977